(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公 開 特 許 公 報(A)

(11)特許出願公開番号

特開2004-339064 (P2004-339064A)

(43) 公開日 平成16年12月2日(2004.12.2)

(51) Int.C1. ⁷	FI		テーマコード (参考)
CO7C 211/57	CO7C	211/57	3K007
CO7D 209/86	CO7D	209/86	4C2O4
CO9K 11/06	CO9K	11/06	620 4HOO6
HO5B 33/14	CO9K	11/06	640
HO5B 33/22	CO9K	11/06	690
	審査請求 未	で請求 請求」	項の数 7 〇L (全 32 頁) 最終頁に続く
(21) 出願番号	特願2003-133908 (P2003-133908)	(71) 出願人	000005887
(22) 出願日	平成15年5月13日 (2003.5.13)	Ì	三井化学株式会社
			東京都港区東新橋一丁目5番2号
		(72) 発明者	戸谷 由之
			千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化
			学株式会社内
		(72) 発明者	
			千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化
			学株式会社内
		(72) 発明者	
			千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化
		(=0) B0EF +	学株式会社内
		(72) 発明者	
			千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化
			学株式会社内
		1	最終頁に続く

(54) 【発明の名称】アミン化合物および該化合物を含有する有機電界発光素子

(57)【要約】 (修正有)

【解決手段】一般式(1)で表されるアミン化合物、および一対の電極間に一般式(1)で表されるアミン化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

$$X_1$$
 X_1
 X_2
 X_2
 X_3
 X_4
 X_4
 X_4
 X_5

10

【特許請求の範囲】

【請求項1】

一般式(1)(化1)で表されるアミン化合物。

【化1】

$$X_1$$
 Z_1
 X_1
 X_2
 X_3
 X_4
 X_4
 X_4
 X_5
 X_5

10

〔式中、 X_1 は置換または未置換のN-カルバゾリル基あるいは-NA r_1 A r_2 (但し、A r_1 およびA r_2 は置換または未置換のアリール基を表す)を表し、 X_2 は-NA r_3 A r_4 (但し、A r_3 およびA r_4 は置換または未置換のアリール基を表す)を表し、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 は、水素原子、ハロゲン原子または- (O) n-Z 基(式中 Z は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、n は 0 または 1 を表す)を表し、 R_1 および R_2 は水素原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 Ar_1 -Ar $_4$ の少なくとも一つは置換または未置換のフルオランテニル基を表す〕

20

【請求項2】

X,が置換または未置換のN-カルバゾリル基である請求項1記載のアミン化合物。

【請求項3】

一対の電極間に、請求項1または2記載のアミン化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

【請求項4】

請求項1または2記載のアミン化合物を含有する層が、正孔注入輸送層である請求項3記載の有機電界発光素子。

【請求項5】

30

請求項1または2記載のアミン化合物を含有する層が、発光層である請求項3記載の有機電界発光素子。

【請求項6】

一対の電極間に、さらに、発光層を有する請求項3~5のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項7】

一対の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する請求項3~6のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

[0001]

40

【発明の属する技術分野】

本発明は、新規なアミン化合物および該アミン化合物を含有してなる有機電界発光素子に関する。

[0002]

【従来の技術】

従来、アミン化合物は各種色素の製造中間体、あるいは各種の機能材料として使用されてきた。

機能材料としては、例えば、電子写真感光体の電荷輸送材料に使用されてきた。最近では、発光材料に有機材料を用いた有機電界発光素子(有機エレクトロルミネッセンス素子: 有機EL素子)の正孔注入輸送材料として有用であることが提案されている〔例えば、特 許文献1〕。

有機電界発光素子は蛍光性有機化合物を含む薄膜を、陽極と陰極間に挟持した構造を有し、該薄膜に電子および正孔(ホール)を注入して、再結合させることにより励起子(エキシントン)を生成させ、この励起子が失活する際に放出される光を利用して発光する素子である。有機電界発光素子は、数 V ~数 + V 程度の直流の低電圧での発光が可能であり、また、蛍光性有機化合物の種類を選択することにより、種々の色(例えば、赤色、青色、緑色)の発光が可能である。このような特徴を有する有機電界発光素子は種々の発光素子は、表示素子等への応用が期待されている。しかしながら、一般に、有機電界発光素子は、安定性、耐久性に乏しいなどの欠点を有している。有機電界発光素子の蛍光性有機化合物を含む薄膜への正孔の注入輸送を効率よく行う目的で、正孔注入輸送材料として、4,4~一ビス [N-フェニルーN-(3"ーメチルフェニル)アミノ] ビフェニルを用いることが提案されている [非特許文献 2]。

また、正孔注入輸送材料として、例えば、9,9-ジアルキル-2,7-ビス(N,N-ジフェニルアミノ)フルオレン誘導体 [例えば、9,9-ジメチル-2,7-ビス(N,N-ジフェニルアミノ)フルオレン〕を用いることも提案されている [特許文献1]。しかしながら、これらのアミン化合物を正孔注入輸送材料として使用した有機電界発光素子も、安定性、耐久性に乏しいなどの難点があった。また、特許文献 2 には安定性、耐久性の改良された有機電界発光素子を提供するために、下記式(a)(化 2)で表される化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも1層挟持してなる有機電界発光素子が開示されている。

[0003]

【化2】

$$H_3C$$
 CH_3 N (a)

30

20

10

[0004]

しかしながら、特許文献 2 に記載された化合物に関し本発明者等が、有機電界発光素子材料としての有用性に関して検討したところ、耐熱性の点でまだ満足できるものでは無いことが判明した。

現在では、安定性、耐久性に優れ、且つ、耐熱性に優れた有機電界発光素子が求められており、そのため、有機電界発光素子の構成材料として使用した際に優れた特性を示す新規なアミン化合物が望まれている。

[0005]

【非特許文献1】Appl. Phys. lett., <u>51</u>, 913 (1987)

【非特許文献2】 Jpn. J. Appl. Phys., 27, L269 (1988)

【特許文献1】特開平5-25473号公報

【特許文献2】特開平11-144873号公報

[0006]

【発明が解決しようとする課題】

本発明の課題は、アミン化合物および該化合物を含有する有機電界発光素子を提供することである。さらに詳しくは、有機電界発光素子の正孔注入輸送材料等に適した、耐熱性の高いアミン化合物、および該アミン化合物を使用した、安定性、耐久性に優れ、且つ耐熱性に優れた有機電界発光素子を提供することである。

[0007]

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記課題を解決するために、種々のアミン化合物および有機電界発光素子に関して鋭意検討を行った結果、本発明を完成させるに至った。すなわち、本発明は、

▲1▼ 一般式(1)(化3)で表されるアミン化合物、

[0008]

【化3】

$$X_1$$
 Z_1
 X_1
 X_2
 X_2
 X_3
 X_4
 X_4
 X_4
 X_5

10

[0009]

[式中、 X_1 は置換または未置換のN-カルバゾリル基あるいは-NA r_1 A r_2 (但し、A r_1 およびA r_2 は置換または未置換のアリール基を表す)を表し、 X_2 は-NA r_3 A r_4 (但し、A r_3 およびA r_4 は置換または未置換のアリール基を表す)を表し、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 は、水素原子、ハロゲン原子または- (O) n-Z 基(式中 Z は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、n は 0 または 1 を表す)を表し、 R_1 および R_2 は水素原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 Ar_1 -Ar $_4$ の少なくとも-0は置換または未置換のフルオランテニル基を表す〕

▲ 2 ▼ X₁ が置換または未置換のN-カルバゾリル基である▲ 1 ▼記載のアミン化合物

▲ 3 ▼ 一対の電極間に、▲ 1 ▼または▲ 2 ▼記載のアミン化合物を少なくとも 1 種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子、

▲ 4 ▼ ▲ 1 ▼または▲ 2 ▼記載のアミン化合物を含有する層が、正孔注入輸送層である ▲ 3 ▼記載の有機電界発光素子、

▲ 5 ▼ ▲ 1 ▼または▲ 2 ▼記載のアミン化合物を含有する層が、発光層である▲ 3 ▼記載の有機電界発光素子、

▲ 6 ▼ 一対の電極間に、さらに、発光層を有する ▲ 3 ▼ ~ ▲ 5 ▼ のいずれかに記載の有機電界発光素子、

▲ 7 ▼ 一対の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する ▲ 3 ▼ ~ ▲ 5 ▼ のいずれかに記載の有機電界発光素子、に関するものである。

[0010]

【発明の実施の形態】

以下、本発明に関し詳細に説明する。

本発明のアミン化合物は一般式(1)(化4)で表される化合物である。

[0011]

【化4】

$$X_1$$
 X_1
 X_2
 X_3
 X_4
 X_4
 X_4
 X_5

30

30

40

[0012]

「式中、 X_1 は置換または未置換のN-カルバゾリル基あるいは $-NAr_1Ar_2$ (但し、 Ar_1 および Ar_2 は置換または未置換のアリール基を表す)を表し、 X_2 は $-NAr_3Ar_4$ (但し、 Ar_3 および Ar_4 は置換または未置換のアリール基を表す)を表し、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 は、水素原子、ハロゲン原子または- (O) n-Z 基(式中 Z は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、n は 0 または 1 を表す)を表し、 R_1 および R_2 は水素原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 $Ar_1 \sim Ar_4$ の少なくとも一つは置換または未置換のフルオランテニル基を表す〕

[0013]

フェナントレニル基、

一般式(1)で表されるアミン化合物において、 X_1 は置換または未置換のN-カルバゾリル基あるいは- N A r $_1$ A r $_2$ (但し、A r $_1$ および A r $_2$ は置換または未置換のアリール基を表す)を表し、X $_2$ は- N A r $_3$ A r $_4$ (但し、A r $_3$ および A r $_4$ は置換または未置換のアリール基を表す)を表す。

 Ar_1 、 Ar_2 、 Ar_3 および Ar_4 は、好ましくは、未置換、もしくは、置換基として、例えば、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されてもよい総炭素数 $6\sim2$ 0 の炭素環式芳香族化合物または総炭素数 $3\sim2$ 0 の複素環式芳香族基であり、より好ましくは、未置換、もしくは、ハロゲン原子、炭素数 $1\sim1$ 4 のアルキル基、炭素数 $1\sim1$ 4 のアルコキシ基、あるいは炭素数 $6\sim2$ 0 の炭素環式芳香族基であり、さらに好ましくは、未置換、もしくは、ハロゲン原子、炭素数 $1\sim4$ のアルキル基、炭素数 $1\sim4$ のアルコキシ基、あるいは炭素数 $6\sim1$ 0 のアリール基で単置換あるいは多置換されていてもよい総炭素数 $6\sim1$ 0 のアリール基で単置換あるいは多置換されていてもよい総炭素数 $6\sim1$ 0 のアリール基で単置換あるいは多

 X_1 で表される置換または未置換のN-カルバゾリル基の具体例としては、例えば、N-カルバゾリル基、2-メチルーN-カルバゾリル基、3-メチルーN-カルバゾリル基、3- のった、3- のった、3

 X_1 および X_2 における A r_1 、 A r_2 、 A r_3 および A r_4 の具体例としては、例えば、フェニル基、 1 - ナフチル基、 2 - ナフチル基、 2 - アントラセニル基、 9 - アントラセニル基、 9 - アントラセニル基、 2 - フェニル 1 0 - アントラセニル基、 4 - フェナントレニル基、 2 - フェナントレニル基、 4 - フェナントレニル基、 2 - フェナントレニル基、 4 - フェナントレニル基、 2 - フェナントレニル基、 2 - フェナントレニル基、 2 - フェニル 1 0 - フェナントレニル基、 1 - メチル 1 0 - フェナントレニル基、 1 - フェニル 1 0 - フェナントレニル基、 1 2 - フェニル 1 2 - フェナントレニル基、 1 3 - フェニル 1 3 - フェナントレニル基、 1 3 - フェニル 1 3 - フェナントレニル基、 1 3 - フェナントレニル 1 3 - フェナントレニ

10

20

30

10

20

30

50

2-7ルオランテニル基、3-7ルオランテニル基、7-7ルオランテニル基、8-7ルオランテニル基、3-4チルー2-7ルオランテニル基、3-4 チルー2-7ルオランテニル基、9-4 チルー2-7ルオランテニル基、9-4 チルー2-7ルオランテニル基、9-4 チルー3-7 ルオランテニル基、9-4 チルー3-7 ルオランテニル基、9-4 チルー3-7 ルオランテニル基、9-4 チルー1-7 ルオランテニル基、1-2 メチルー1-7 ルオランテニル基、1-2 メチルー1-7 ルオランテニル基、1-2 ステルー1-7 ルオランテニル基、1-2 ステルー1-7 ルオランテニル基、1-2 ステルー1-7 ルオランテニル基、1-2 ステールオランテニル基、1-2 ステールオテールオランテニル基、1-2 ステールオテールオランテニル基、1-2 ステールオテール

3-x チルー 2-y ルオランテニル基、8-n-y ロピルー 3-y ルオランテニル基、3-t e r t ーブチルー 2-y ルオランテニル基、2-t e r t ーブチルー 3-y ルオランテニル基、3-t e r t ーブチルー 4-y ルオランテニル基、3-t e r t ーブチルー 9-y ルオランテニル基、2-y ロペンチルー 3-y ルオランテニル基、2-y ロペナシルー 3-y ルオランテニル基、9-y クロペキシルー 3-y ルオランテニル基、3-y ロペキシルー 3-y ルオランテニル基、3-y ロペキシルー 3-y ルオランテニル基、3-y ロペキシルー 3-y ルオランテニル基、3-y ロペキシルー 3-y ルオランテニル基、3-y ロペキシアニル基、3-y ロペキシアニル基、3-y ロペキシアニル基、3-y ロペキシアニル基、3-y ロペキシアニル基、3-y ロペキシアニル基、3-y ロップ・アグマンチル)

2-メトキシ-3-フルオランテニル基、3-メトキシ-4-フルオランテニル基、3-エトキシ-4-フルオランテニル基、9-イソプロピルオキシ-3-フルオランテニル基、3-シクロヘキシルオキシ-4-フルオランテニル基、3-シクロヘキシルオキシ-4-フルオランテニル基、3-メトキシ-9-フルオランテニル基、3-メトキシ-9-フルオランテニル基、3-シクロペンチルオキシ-9-フルオランテニル基、3-シクロペンチルオキシ-9-フルオランテニル基、3-シクロヘキシルオキシ-9-フルオランテニル基、

3-7ェニルー2-7ルオランテニル基、3, 4-ジフェニルー2-7ルオランテニル基、8-7ェニルー2-7ルオランテニル基、9-7ェニルー3-7ルオランテニル基、9-7ェニルー3-7ルオランテニル基、9-7ェニルー3-7ルオランテニル基、3-7ェニルー3-7ルオランテニル基、3-7ェニルー3-7ルオランテニル基、3-7ェニルー3-7ルオランテニル基、3-7ェニルー3-7ルオランテニル基、3-7 (3-70) (3-71) (

3-フェノキシ-2-フルオランテニル基、3,4-ジフェノキシ-2-フルオランテニル基、8-フェノキシ-2-フルオランテニル基、9-フェノキシ-2-フルオランテニル基、2-フェノキシ-3-フルオランテニル基、8-フェノキシ-3-フルオランテニル基、9-フェノキシ-3-フルオランテニル基、3-フェノキシ-4-フルオランテニル基、3,4-ジフェノキシ-9-フルオランテニル基、2,3-ジフェノキシ-8-フルオランテニル基、3,4-ジフェノキシ-9-フルオランテニル基、

ペインノールを、3,4 ーンフェノインーョーノルオフンノールを、4 ーキノリニル基、1 ーピレニル基、4 ーピリジニル基、3 ーピリジニル基、2 ーピリジニル基、2 ーオキサゾリル基、2 ーチアゾリル基、2 ーベンゾオキサゾリル基、2 ーボンゾチアゾリル基、2 ーボンゾチアゾリル基、2 ーボンゾイミダゾリル基、4 ーメチルフェニル基、3 ーメチルフェニル基、2 ーメチルフェニル基、4 ーエチルフェニル基、3 ーエチルフェニル基、2 ーエチルフェニル基、4 ー n ープロピルフェニル基、4 ーイソプロピルフェニル基、4 ー s e c ーブチルフェニル基、4 ー t e r t ーブチルフェニル基、3 ー t e r t ーブチルフェニル基、2 ー t e r t ブチルフェニル基、4 ー n ーペンチルフェニル基、4 ー t e r t ーペンチルフェニル基、4 ー n ーペンチルフェニル基、4 ー n ーペンチルフェニル基、4 ー n ーペナルフェニル基、4 ー n ーペナチルフェニル基、4 ー n ーペナルフェニル基、4 ー n ーペナルフェニル基、4 ー n ーペナルフェニル基、4 ー n ーペプチルフェニル基、4 ー n ーオクチルフェニル基、4 ー (2 ' ーエチルペキシル)フェニルスプチルフェニル基、4 ー n ーオクチルフェニル基、4 ー (2 ' ーエチルペキシル)フェニルス

10

20

30

50

ニル基、4-tert-オクチルフェニル基、4-n-デシルフェニル基、4-n-ドデ シルフェニル基、4-n-テトラデシルフェニル基、4-シクロペンチルフェニル基、4 - シクロヘキシルフェニル基、4- (4'-メチルシクロヘキシル)フェニル基、4- (4'-tert-ブチルシクロヘキシル)フェニル基、3-シクロヘキシルフェニル基、 2-シクロヘキシルフェニル基、4-エチル-1-ナフチル基、6-n-ブチル-2-ナ フチル基、2,4-ジメチルフェニル基、3,5-ジメチルフェニル基、2,6-ジメチ ルフェニル基、2,4-ジエチルフェニル基、2,3,5-トリメチルフェニル基、2, 3,6-トリメチルフェニル基、3,4,5-トリメチルフェニル基、2,6-ジエチル フェニル基、2,5-ジイソプロピルフェニル基、2,6-ジイソブチルフェニル基、2 , 4 - ジーtertーブチルフェニル基、2, 5 - ジーtertーブチルフェニル基、4 6-ジ-tert-ブチル-2-メチルフェニル基、5-tert-ブチル-2-メチ ルフェニル基、4-tert-ブチル-2,6-ジメチルフェニル基、 4-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル基、2-メトキシフェニル基、4-エト キシフェニル基、3-エトキシフェニル基、2-エトキシフェニル基、4-n-プロポキ シフェニル基、3-n-プロポキシフェニル基、4-イソプロポキシフェニル基、3-イ ソプロポキシフェニル基、2-イソプロポキシフェニル基、4-n-ブトキシフェニル基 、4-イソブトキシフェニル基、2-sec-ブトキシフェニル基、4-n-ペンチルオ キシフェニル基、4-イソペンチルオキシフェニル基、2-イソペンチルオキシフェニル 基、4-ネオペンチルオキシフェニル基、2-ネペンチルオキシフェニル基、4-n-ヘ キシルオキシフェニル基、2-(2'-エチルブチルオキシ)フェニル基、4-n-オク チルオキシフェニル基、4-n-デシルオキシフェニル基、4-n-ドデシルオキシフェ ニル基、4-n-テトラデシルオキシフェニル基、4-シクロヘキシルオキシフェニル基 、2-シクロヘキシルオキシフェニル基、2-メトキシ-1-ナフチル基、4-メトキシ - 1 - ナフチル基、4 - n - ブトキシ- 1 - ナフチル基、5 - エトキシ- 1 - ナフチル基 、6-メトキシー2-ナフチル基、6-エトキシー2-ナフチル基、6-n-ブトキシー 2-ナフチル基、6-n-ヘキシルオキシ-2-ナフチル基、7-メトキシ-2-ナフチ ル基、7-n-ブトキシー2-ナフチル基、2-メチル-4-メトキシフェニル基、2-メチルー5-メトキシフェニル基、3-メチルー5-メトキシフェニル基、3-エチルー 5-メトキシフェニル基、2-メトキシ-4-メチルフェニル基、3-メトキシ-4-メ チルフェニル基、2,4-ジメトキシフェニル基、2,5-ジメトキシフェニル基、2, 6-ジメトキシフェニル基、3,4-ジメトキシフェニル基、3,5-ジメトキシフェニ ル基、3,5-ジエトキシフェニル基、3,5-ジーn-ブトキシフェニル基、2-メト キシー4-エトキシフェニル基、2-メトキシー6-エトキシフェニル基、3,4,5-トリメトキシフェニル基、4-フェニルフェニル基、3-フェニルフェニル基、2-フェ ニルフェニル基、4-(4'-メチルフェニル)フェニル基、4-(3'-メチルフェニ ル)フェニル基、4-(4'-メトキシフェニル)フェニル基、4-(4'-n-ブトキ シフェニル)フェニル基、2-(2'ーメトキシフェニル)フェニル基、4-(4'-ク ロロフェニル)フェニル基、3-メチル-4-フェニルフェニル基、3-メトキシ-4-フェニルフェニル基、4-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、2-フルオロ フェニル基、4-クロロフェニル基、3-クロロフェニル基、2-クロロフェニル基、4 ーブロモフェニル基、3-ブロモフェニル基、2-ブロモフェニル基、4-クロロー1-ナフチル基、4-クロロー2-ナフチル基、6-ブロモー2-ナフチル基、2,3-ジフ ルオロフェニル基、2,5-ジフルオロフェニル基、2,6-ジフルオロフェニル基、3 , 4 - ジフルオロフェニル基、3, 5 - ジフルオロフェニル基、2, 3 - ジクロロフェニ ル基、2,4-ジクロロフェニル基、2,5-ジクロロフェニル基、3,4-ジクロロフ エニル基、3,5-ジクロロフェニル基、2,5-ジブロモフェニル基、2,4,6-ト リクロロフェニル基、2,4-ジクロロ-1-ナフチル基、1,6-ジクロロ-2-ナフ チル基、2-フルオロー4-メチルフェニル基、2-フルオロー5-メチルフェニル基、 3-フルオロ-2-メチルフェニル基、3-フルオロ-4-メチルフェニル基、2-メチ ルー4-フルオロフェニル基、2-メチル-5-フルオロフェニル基、3-メチル-4フルオロフェニル基、2-クロロー4ーメチルフェニル基、2-クロロー4ーメチルフェニル基、2-クロロー5ーメチルフェニル基、2-クロロー6ーメチルフェニル基、2ーメチルー3-クロロフェニル基、2ーメチルー4ークロロフェニル基、3-メチルー4ークロロフェニル基、2-ノロロー4,6ージメチルフェニル基、2-メトキシー4ーフルオロフェニル基、2-フルオロー4ーメトキシフェニル基、2-フルオロー4ーメトキシフェニル基、2-フルオロー4ーエトキシフェニル基、2-フルオロー6ーメトキシフェニル基、3-フルオロー4ーエトキシフェニル基、3-クロロー4ーメトキシフェニル基、2ーメトキシー5-クロロフェニル基、3ーメトキシー6-クロロフェニル基、5-クロロー2,4-ジメトキシフェニル基を挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

10

一般式(1)で表されるアミン化合物において、 $Ar_1 \sim Ar_4$ は、それぞれが同種であってもよく、また、すべてが異なっていても良い。一般式(1)で表されるアミン化合物において Ar_1 、 Ar_2 、 Ar_3 および Ar_4 は、少なくとも一つがフルオランテニル基である。

また、 $Ar_1 \sim Ar_4$ の少なくとも一つである置換または未置換のフルオランテニル基としては、好ましくは、置換または未置換の2-フルオランテニル基、置換または未置換の3-フルオランテニル基、置換または未置換の7-フルオランテニル基、あるいは、置換または未置換の8-フルオランテニル基を挙げることができ、より好ましくは、置換または未置換の3-フルオランテニル基、あるいは置換または未置換の8-フルオランテニル基を挙げることができる。

20

[0014]

一般式(1)で表されるアミン化合物において、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 は水素原子、ハロゲン原子またはー(O) n-Z 基(式中Z は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、 n は 0 または 1 を表す)を表し、 好ましくは、水素原子、ハロゲン原子またはー(O) n-Z 基(式中Z は、置換または未置換の炭素数 $1\sim1$ 6の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは置換または未置換の炭素数 $1\sim1$ 6の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは置換または未置換の炭素数 $1\sim1$ 6の直鎖、分岐鎖またはでの) $1\sim1$ 7 を表す)を表し、より好ましくは、水素原子、ハロゲン原子またはー(O) $1\sim1$ 7 を表す)を表し、より好ましくは、水素原子、ハロゲン原子または一(O) $1\sim1$ 8 を表す)を表し、このアリール基を表し、 $1\sim1$ 8 に対象または未置換の炭素数 $1\sim1$ 8 の直鎖、分岐鎖または未置換の炭素数 $1\sim1$ 8 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換の炭素数 $1\sim1$ 8 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換の炭素数 $1\sim1$ 8 のを表す。

30

尚、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 の- (O) n-Z 基のZ である置換または未置換のアリール基の具体例としては、例えば、 Ar_1 、 Ar_2 、 Ar_3 および Ar_4 の具体例として挙げた置換または未置換のアリール基を挙げることができる。

40

 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 の- (O) n-2 基のZである置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基の具体例としては、例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、1 イソプロピル基、1 イソブチル基、1 を 1 を 1 と 1

、ボルネル基、イソボルネル基、1-ノルボルニル基、2-ノルボルナンメチル基、1-ビシクロ [2.2.2] オクチル基、1-アダマンチル基、2-アダマンチル基、3-ノルアダマンチル基、1-アダマンチル基、1-アダマンチル基、1-アダマンチル基、1-アダマンチル基、1-アダマンチル基、1-アダマンチル基、1-アダマンチル基、1-アグマンチル基、1-アグマンチル基、1-アグマンチル基、1-アグロペンチル基、1- ルシクロペキシル基、1- ルシクロオクチル基、シクロデシル基、シクロデシル基、シクロテトラデシル基、シクロオクチル基、シクロデシル基、シクロデシル基、シクロテトラデシル基、

10

メトキシメチル基、エトキシメチル基、n-ブトキシメチル基、n-ヘキシルオキシメチ ル基、(2-エチルブチルオキシ)メチル基、n-オクチルオキシメチル基、n-デシル オキシメチル基、2-メトキシエチル基、2-エトキシエチル基、2-n-プロポキシエ チル基、2-イソプロポキシエチル基、2-n-ブトキシエチル基、2-n-ペンチルオ キシエチル基、2-n-ヘキシルオキシエチル基、2-(2,-エチルブチルオキシ)エ チル基、2-n-ヘプチルオキシエチル基、2-n-オクチルオキシエチル基、2-(2 '-エチルヘキシルオキシ)エチル基、2-n-デシルオキシエチル基、2-n-ドデシ ルオキシエチル基、2-n-テトラデシルオキシエチル基、2-シクロヘキシルオキシエ チル基、2-メトキシプロピル基、3-メトキシプロピル基、3-エトキシプロピル基、 3-n-プロポキシプロピル基、3-イソプロポキシプロピル基、3-(n-ブトキシ) プロピル基、3-(n-ペンチルオキシ)プロピル基、3-(n-ヘキシルオキシ)プロ ピル基、3-(2'-エチルブトキシ)プロピル基、3-(n-オクチルオキシ)プロピ ル基、3-(2.-エチルヘキシルオキシ)プロピル基、3-(n-デシルオキシ)プロ ピル基、3-(n-ドデシルオキシ)プロピル基、3-(n-テトラデシルオキシ)プロ ピル基、3-シクロヘキシルオキシプロピル基、4-メトキシブチル基、4-エトキシブ チル基、4-n-プロポキシブチル基、4-イソプロポキシブチル基、4-n-ブトキシ ブチル基、4-n-ヘキシルオキシブチル基、4-n-オクチルオキシブチル基、4-n ーデシルオキシブチル基、4-n-ドデシルオキシブチル基、5-メトキシペンチル基、 5-エトキシペンチル基、5-n-プロポキシペンチル基、6-エトキシヘキシル基、6 ーイソプロポキシヘキシル基、6-n-ブトキシヘキシル基、6-n-ヘキシルオキシヘ キシル基、6-n-デシルオキシヘキシル基、4-メトキシシクロヘキシル基、7-エト キシヘプチル基、7-イソプロポキシヘプチル基、8-メトキシオクチル基、10-メト キシデシル基、10-n-ブトキシデシル基、12-エトキシドデシル基、12-イソプ ロポキシドデシル基、テトラヒドロフルフリル基、

20

2-(2'-メトキシエトキシ) エチル基、2-(2'-エトキシエトキシ) エチル基、2-(2'-n-7)トキシエトキシ) エチル基、3-(2'-x)キシエトキシ) プロピル基、2-yルオキシエチル基、2-(4'-x)テニルオキシ) エチル基、3-yルオキシプロピル基、3-(2'-x)テニルオキシ) プロピル基、3-(2'-x)テニルオキシ) プロピル基、3-(2'-x)テニルオキシ) プロピル基、3-(2'-x)テニルオキシ) プロピル基、3-(1'-y)ロペキセニルオキシ) プロピル基、3-(1'-y)ルオキシブチル基、

30

ベンジルオキシメチル基、2 - ベンジルオキシエチル基、2 - フェネチルオキシエチル基、2 - (4 ' - メチルベンジルオキシ) エチル基、2 - (2 ' - メチルベンジルオキシ) エチル基、2 - (4 ' - フルオロベンジルオキシ) エチル基、2 - (4 ' - クロロベンジルオキシ) エチル基、3 - (4 ' - メトキシベンジルオキシ) プロピル基、4 - ベンジルオキシブチル基、2 - (4 ' - メチルベンジルオキシブチル基、2 - (4 ' - メチルベンジルオキシメトキシ) エチル基、2 - (4 ' - (4

40

フェニルオキシメチル基、4-メチルフェニルオキシメチル基、3-メチルフェニルオキシメチル基、2-メチルフェニルオキシメチル基、4-メトキシフェニルオキシメチル基

、4 - フルオロフェニルオキシメチル基、4 - クロロフェニルオキシメチル基、2 - クロロフェニルオキシメチル基、2 - フェニルオキシエチル基、2 - (4'ーメチルフェニルオキシ)エチル基、2 - (4'ーメトキシ)エチル基、2 - (4'ーメトキシ)エチル基、2 - (4'ークロロフェニルオキシ)エチル基、2 - (4'ーブロモフェニルオキシ)エチル基、2 - (4'ープロモフェニルオキシ)エチル基、2 - (1'ーナフチルオキシ)エチル基、2 - (2'ーナフチルオキシ)プロピル基、3 - フェニルオキシプロピル基、3 - (2'ーナフチルオキシ)プロピル基、4 - フェニルオキシブチル基、4 - (2'ーエチルフェニルオキシ)ペンチル基、6 - (2'ークロロフェニルオキシ)へキシル基、8 - フェニルオキシオクチル基、10 - フェニルオキシデシル基、10 - (3'ークロロフェニルオキシ)デシル基、2 - (2'ーフェニルオキシ)プロピル基、4 - (2'ーフェニルオキシ)エチル基、3 - (2'ーフェニルオキシエトキシ)プロピル基、4 - (2'ーフェニルオキシエトキシ)ブチル基、

n-ブチルチオメチル基、n-ヘキシルチオメチル基、2-メチルチオエチル基、2-エチルチオエチル基、2-nーオクチルチオエチル基、2-nーオクチルチオエチル基、2-nーオクチルチオエチル基、2-nーデシルチオエチル基、3-メチルチオプロピル基、3-エチルチオプロピル基、3-ロピル基、3-ロピル基、3-ロピル基、3-ロピル基、3-ロピル基、3-ロピル基、3-ロピルチオブチル基、3-ロピルチオブチル基、3-ロピルチオブチル基、3-ロピルチオブチル基、3-ロピルチオブチル基、3-ロピルチオウチル基、3-ロピルチオ)エチル基、3-ロピルチオ)ブチル基、3-(3-エチルチオンチル基、3-(3-エチルチオンジルチオブチル基、3-(3-エチルガンジルチオブチル基、3-(3-エテルズンジルチオプロピルチオ)プロピル基、3-(3-ベンジルチオプロピルチオ)プロピル基、3-(3-ベンジルチオプロピルチオ)プロピル基、3-(3-ベンジルチオプロピルチオ)プロピル基、

2-フェニルチオエチル基、2-(4'-メトキシフェニルチオ)エチル基、2-(2'-フェニルオキシエチルチオ)エチル基、3-(2'-フェニルチオエチルチオ)プロピル基、

フルオロメチル基、3 ーフルオロプロピル基、6 ーフルオロヘキシル基、8 ーフルオロオロクチル基、トリフルオロメチル基、1, 1 ージヒドローパーフルオロエチル基、1, 1 ージヒドローパーフルオロー n ープロピル基、1, 1 ージヒドローパーフルオロー n ープロピル基、1, 1 ージヒドローパーフルオロー n ープロピル基、1, 1 ージヒドローパーフルオロー n ーブチル基、1, 1 ージヒドローパーフルオロー n ーベーフルオロー n ーペンチル基、1, 1 ージヒドローパーフルオロー n ーベーフルオロー n ーベーフルオロシクロヘキシル基、1, 1 ージヒドローパーフルオロー n ーデシル基、1, 1 ージヒドローパーフルオロー n ーデシル基、1, 1 ージヒドローパーフルオロー n ーデシル基、1, 1 ージヒドローパーフルオロー n ーテトラデシル基、1, 1 ージヒドローパーフルオロー n ーテトラデシル基、1, 1 ージヒドローパーフルオロー n ーベキシル基、1, 1 ージヒドローパーフルオロー 1 ーベキシル基、1 ーグロロシクロロメチル基、1 ークロロヘプチル基、1 ークロロシクロヘキシル基、1 ークロロヘプチル基、1 ークロロカクチル基、1 ークロロトプチル基、1 ークロロトプチル基、1 ークロロトプチル基、1 ークロロトプチル基、1 ークロロトプチル基、1 ークロロトプチル基、1 ークロロトプチル基、1 ークロロトプチル基、1 ークロロトプチル基、1 ーグロロトプチル基、1 ーグローバープチル基、1 ーグロロトプチル基、1 ーグロロトプチル基、1 ーグロロトプチル基、1 ーグロロトプチル基、1 ーグロロトプチル基、1 ーグロロトプチル基、1 ーグロロトプチル基、1 ーグロロトプチル基、1 ーグロートプチル基、1 ーグロロトプチル基、1 ーグローバープチル基、1 ーグローバープチル基、1

2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシプロピル基、3-ヒドロキシプロピル基、3-ヒドロキシブチル基、4-ヒドロキシブチル基、6-ヒドロキシヘキシル基、5-ヒドロキシヘプチル基、8-ヒドロキシオクチル基、10-ヒドロキシデシル基、12-ヒドロキシドデシル基、2-ヒドロキシシクロヘキシル基などの直鎖、分岐または環状のアルキル基を挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 のハロゲン原子の具体例としては、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子などのハロゲン原子を挙げることができる。

一般式(1)で表されるアミン化合物において、 R_1 および R_2 は水素原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、好ましくは、水素原子、炭素数 $1\sim1$ 6 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 $4\sim1$ 6 の置換または未置換のアリール基、あるいは、炭素数 $5\sim1$ 6 の置換または未置換のアラルキル基を表し、より好ましくは、水素原子、炭素数

10

20

30

 $1 \sim 8$ の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 $6 \sim 1$ 2 の置換または未置換のアリール基、あるいは、炭素数 $7 \sim 1$ 2 の置換または未置換のアラルキル基を表す。

R₁ およびR₂ の置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基の具体例としては、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 の具体例として挙げた置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基を挙げることができる。

 R_1 および R_2 の置換または未置換のアリール基の具体例としては、 Ar_1 、 Ar_2 、 Ar_3 および Ar_4 の具体例として挙げた置換または未置換のアリール基を挙げることができる。

R」およびR2の置換または未置換のアラルキル基の具体例としては、例えば、ベンジル 基、αーメチルベンジル基、αーエチルベンジル基、フェネチル基、αーメチルフェネチ ル基、β-メチルフェネチル基、α, α-ジメチルベンジル基、α, α-ジメチルフェネ チル基、4-メチルフェネチル基、4-メチルベンジル基、3-メチルベンジル基、2-メチルベンジル基、4-エチルベンジル基、2-エチルベンジル基、4-イソプロピルベ ンジル基、4-tert-ブチルベンジル基、2-tert-ブチルベンジル基、4-t ert-ペンチルベンジル基、4-シクロヘキシルベンジル基、4-n-オクチルベンジ ル基、4-tert-オクチルベンジル基、4-アリルベンジル基、4-ベンジルベンジ ル基、4ーフェネチルベンジル基、4-フェニルベンジル基、4-(4、-メチルフェニ ル) ベンジル基、4-メトキシベンジル基、2-メトキシベンジル基、2-エトキシベン ジル基、4-n-ブトキシベンジル基、4-n-ヘプチルオキシベンジル基、4-n-デ シルオキシベンジル基、4-n-テトラデシルオキシベンジル基、4-n-ヘプタデシル オキシベンジル基、3,4-ジメトキシベンジル基、4-メトキシメチルベンジル基、4 ーイソブトキシメチルベンジル基、4-アリルオキシベンジル基、4-ビニルオキシメチ ルベンジル基、4-ベンジルオキシベンジル基、4-フェネチルオキシベンジル基、4-フェニルオキシベンジル基、3-フェニルオキシベンジル基、

4-ヒドロキシベンジル基、3-ヒドロキシベンジル基、2-ヒドロキシベンジル基、4-ヒドロキシ-3-メトキシベンジル基、4-フルオロベンジル基、2-フルオロベンジル基、3-クロロベンジル基、2-クロロベンジル基、3,4-ジクロロベンジル基、2-フルフリル基、ジフェニルメチル基、1-ナフチルメチル基、2-ナフチルメチル基などのアラルキル基を挙げることができる。

[0015]

本発明に係る一般式(1)で表されるアミン化合物の具体例としては、例えば、以下に示す化合物を挙げることができるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

- 1. N, N, N' ートリフェニルーN' (3' ーフルオランテニル) -2, 7 ジアミノ 9 H フルオレン
- 2. N, N, N, O トリフェニル O -

- 5. N, N, N' ートリ (1' ーナフチル) ー N' ー (3" ーフルオランテニル) ー 2, 7-ジアミノー 9. 9-ジメチルー 9 H ーフルオレン
- 7. N, N, N' ートリ (4' ーフェノキシフェニル) ー N' ー (3" ーフルオランテニル) ー 2, 7 ージアミノー 9, 9 ージシクロヘキシルー 9 H ーフルオレン
- 8. N, N, N'ートリ(2'ーメチルフェニル)-N'ー(3"ーフルオランテニル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロペンチル-9 H-フルオレン
- 9. N, N, N' -トリフェニル- N' (3 ' フルオランテニル) <math>- 2, 7 ジアミノ- 9, 9 ジフェニル- 9 H フルオレン

10

20

30

```
10. N, N, N'-トリ(1'-ナフチル)-N'-(3"-フルオランテニル)-2
, 7-ジアミノ-9, 9-ジベンジル-9H-フルオレン
11. N, N, N'-トリ(2'-ナフチル)-N'-(3"-フルオランテニル)-2
, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
12. N, N, N'-トリ(4'-メトキシフェニル)-N'-(9"-フェニル-3"
-フルオランテニル) - 2, 7-ジアミノ-9, 9-n-ジオクチル-9H-フルオレン
13. N, N, N'-トリ(2'-フェニルフェニル)-N'-(4"-メチル-3"-
フルオランテニル) - 2, 7 - ジアミノ-9, 9 - ジメチル-9 H - フルオレン
14. N, N, N'-トリ(2, 4-ジフェニルフェニル)-N'-(3"-メチル-9
" -フルオランテニル) - 2 、 7 - ジアミノ - 9 、 9 - ジシクロペンチル - 9 H - フルオ
レン
15. N, N, N'ートリフェニルーN'ー(8'ーフルオランテニル)ー2, 7ージア
ミノー9, 9-ジフェニルー9H-フルオレン
16. N, N, N'-トリフェニル-N'-(3'-フルオランテニル)-2, 7-ジア
ミノ-9, 9-ジ (1"-ナフチル)-9H-フルオレン
17. N, N, N'-トリフェニル-N'-(3'-フルオランテニル)-2, 7-ジア
ミノ-3, 6-ジフェニル-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン18. N, N, N'-
トリフェニル-N'-(2'-フルオランテニル)-2, 7-ジアミノ-3, 6-ジメチ
ル-9、9-ジメチル-9H-フルオレン
19. N, N, N' - トリフェニル - N' - (3' - フルオランテニル) - 2, 7 - ジア
ミノー3-フェニルー9,9-ジシクロヘキシルー9H-フルオレン
2 O . N, N' -ジフェニル-N, N' -ジ (3' -フルオランテニル) - 2, 7 - ジア
ミノー9H-フルオレン
21. N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(3'-フルオランテニル)-2, 7-ジア
ミノー9, 9ージメチルー9H-フルオレン
22. N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(3'-フルオランテニル)-2, 7-ジア
ミノー9,9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
23. N, N'-ジ(2'-ナフチル)-N, N'-ジ(3"-フルオランテニル)-2
, 7 - ジアミノー 9 , 9 - ジメチルー 9 H - フルオレン
2 4. N, N' - ジ (1' - ナフチル) - N, N' - ジ (3" - フルオランテニル) 2,
                                                 30
7-ジアミノー9, 9-ジメチルー9H-フルオレン
25. N, N'-ジ(4'-メチルフェニル)-N, N'-ジ(3"-フルオランテニル
) - 2, 7 - ジアミノー9, 9 - ジシクロペンチルー9H - フルオレン
2 6. N, N' - ジ (2' - メチルフェニル) - N, N' - ジ (3" - フルオランテニル
27. N, N' -ジ(3' -エチルフェニル) - N, N' -ジ(3" -フェニル-4" -
フルオランテニル) - 2, 7 - ジアミノ-9, 9 - ジメチル-9 H - フルオレン
28. N, N'-ジ(1'-ナフチル)-N, N'-ジ(3"-メチル-4"-フルオラ
ンテニル) -2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
29. N, N' -ジ (2' -フェニルフェニル) -N, N' -ジ (3", 4" -ジメチル
-9" -フルオランテニル) -2, 7 - ジアミノ-9, 9 - ジメチル-9 H - フルオレン
30. N, N' - ジ (4' - フェノキシフェニル) - N, N' - ジ (3", 4" - ジフェ
ニルー9"-フルオランテニル)-2,7-ジアミノ-9,9-ジメチル-9H-フルオ
レン
3 1. N, N' - ジ (2' - フェニルフェニル) - N, N' - ジ (3" - フルオランテニ
ル) - 2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
3 2. N, N' -ジ (2', 5' -ジフェニルフェニル) - N, N' -ジ (3" - フルオ
ランテニル) - 2, 7 - ジアミノ - 9, 9 - ジシクロペンチル - 9 H - フルオレン
```

33. N, N' - ジ (2', 5' - ジメチルフェニル) - N, N' - ジ (3" - フルオラ

ンテニル) - 2, 7 - ジアミノ - 9, 9 - ジメチル - 9 H - フルオレン

```
3 4. N, N' - ジ (4' - フェニルフェニル) - N, N' - ジ (3" - フルオランテニ
ル) - 2, 7 - ジアミノ - 9, 9 - ジメチル - 9 H - フルオレン
35.\ N,\ N'-ジ(4'-シアノフェニル)-N,\ N'-ジ(3"-フルオランテニル
) -2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
36. N, N'-ジ(4'-フェニルフェニル)-N, N'-ジ(3"-フルオランテニ
ル) - 2, 7 - ジアミノ - 9, 9 - ジシクロヘキシル - 9 H - フルオレン
37. N, N' - ジ (4' - フェニルフェニル) - N, N' - ジ (3" - フルオランテニ
ル) -2, 7-ジアミノ-9, 9-ジベンジル-9H-フルオレン38. N, N'-ジ (
4' - t e r t - \vec{j} + \vec{j} +
-ジアミノ-9, 9-ジベンジル-9H-フルオレン
                                                                                                                      10
39. N, N'ージ(4'ーシクロヘキシルフェニル) - N, N'ージ(3"-フルオラ
ンテニル) -2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
40. N, N'ージフェニル-N, N'-(3'-フルオランテニル) -2, 7 - ジアミ
J-9, 9-ジフェニル-9H-フルオレン
41. N, N'-ジフェニル-N, N'-(3'-フルオランテニル)-2, 7-ジアミ
ノ-9, 9-ジ (4"-フェニルフェニル)-9H-フルオレン
42. N, N'-ジフェニル-N, N'-(3'-フルオランテニル)-2, 7-ジアミ
ノ-9, 9-ジ (1"-ナフチル) -9H-フルオレン
43. N, N'-ジ(1'-ナフチル)-N, N'-(3"-フルオランテニル)-2,
7-ジアミノ-9, 9-ジフェニル-9H-フルオレン
                                                                                                                      20
44. N, N-ジフェニル-N', N'-ジ(3'-フルオランテニル)-2, 7-ジア
ミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
45. N, N-ジ(2'-メチルフェニル)-N', N'-ジ(3"-フルオランテニル
) - 2, 7 - ジアミノー 9, 9 - ジメチル - 9 H - フルオレン
46. N, N-ジ(2'-メトキシフェニル)-N', N'-ジ(3"-フルオランテニ
ル) - 2, 7 - ジアミノ - 9, 9 - ジメチル - 9 H - フルオレン
47. N, N-ジ(2', 5'-ジメチルフェニル)-N', N'-ジ(3"-フルオラ
ンテニル)-2,7-ジアミノー9,9-ジメチル-9H-フルオレン
48. N, N-ジ(4'-クロロフェニル)-N', N'-ジ(9"-メチル-3"-フ
ルオランテニル) -2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
                                                                                                                      30
49. N, N-ジ (4'-シクロヘキシルフェニル) -N', N'-ジ (3"-フルオラ
ンテニル) -2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
50. N, N-ジ(4'-シクロヘキシルフェニル)-N', N'-ジ(3"-メチルー
4"-フルオランテニル)-2,7-ジアミノ-9,9-ジメチル-9H-フルオレン
5 1. N, N-ジ (4'-tert-ブチルフェニル) - N', N'-ジ (9"-メチル
-3" ーフルオランテニル) -2, 7 ージアミノー9, 9 ージシクロヘキシルー9H-フ
ルオレン
52. N, N-ジフェニル-N', N'-ジ(3'-フルオランテニル)-2, 7-ジア
ミノー9, 9-ジフェニルー9H-フルオレン
40
ミノー9,9-ジ(4'-シクロヘキシルフェニル)-9H-フルオレン
54. N, N-ジフェニル-N', N'-ジ(3'-フルオランテニル)-2, 7-ジア
ミノ-9, 9-ジ (4'-フェニルフェニル) -9H-フルオレン55. N, N-ジフェ
-\mu - N', N' -ジ (3' -フルオランテニル) - 2, 7 -ジアミノ- 9, 9 -ジ (2
'ーフェニルフェニル)-9H-フルオレン56.N-フェニル-N-(3 '-フルオラ
ンテニル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9,9-ジメチル-9H-フルオレ
ン
5 7. N- (1'-ナフチル)-N- (3"-フルオランテニル)-2-N'-カルバゾ
リルー7-アミノー9,9-ジメチル-9H-フルオレン
```

5 8 . N - (2' - ナフチル) - N - (3" - フルオランテニル) - 2 - N ' - カルバゾ

```
リルー7-アミノー9, 9-ジメチルー9H-フルオレン
59. N- (4'-フェニルフェニル) -N- (3"-フルオランテニル) -2-N'-
カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン60. N-(2'-メ
チルフェニル) - N - (3" - フルオランテニル) - 2 - N' - カルバゾリル-7 - アミ
ノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
6 1. N-(2', 5'-ジメチルフェニル)-N-(3"-フルオランテニル)-2-
N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
62. N-(4'-シクロヘキシルフェニル)-N-(3"-フルオランテニル)-2-
N'-カルバゾリルー7-アミノー9,9-ジメチル-9H-フルオレン
63. N-フェニル-N-(3'-フルオランテニル)-2-N'-カルバゾリル-7-
                                                                                                                                              10
アミノー9、9-ジーiso-プロピルー9H-フルオレン
64. N-フェニル-N-(3'-フルオランテニル)-2-N'-カルバゾリル-7-
アミノ-9, 9-ジ-n-ヘキシル-9H-フルオレン
アミノー9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
66. N-フェニル-N-(3'-フルオランテニル)-2-N'-カルバゾリル-7-
r \leq 1 - 9, 9 - t e r t - \mathcal{I} + \mathcal
67. N-フェニル-N-(3'-フルオランテニル)-2-N'-カルバゾリル-7-
アミノ-9, 9-ジベンジル-9H-フルオレン
68. N-フェニル-N-(3'-フルオランテニル)-2-N'-カルバゾリル-7-
アミノー9, 9ージ(4"ーメトキシベンジル)ー9Hーフルオレン
69. N-フェニル-N-(3'-フルオランテニル)-2-N'-カルバゾリル-7-
アミノー9, 9-ジ(4"-フェニルベンジル)-9H-フルオレン
70. N- (4'-フェニルフェニル)-N- (3"-フルオランテニル)-2-N'-
カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
7 1. N- (1'-ナフチル)-N- (3"-フルオランテニル)-2-N'-カルバゾ
リル-7-アミノ-9, 9-ジシクロペンチル-9 H - フルオレン 7 2. N - (2' - ナ
フチル) - N - (3" -フルオランテニル) - 2 - N' -カルバゾリル-7-アミノ-9
, 9-ジ(1"'-アダマンチル)-9H-フルオレン
73. N- (1'-ナフチル) - N- (8"-フルオランテニル) - 2 - N'-カルバゾ
                                                                                                                                               30
リルー7-アミノー9, 9-ジシクロプロピルー9H-フルオレン74.N-フェニルー
N - (3' - 7) ーフルオランテニル) -2 - N' - (2", 7" - 5) チルカルバゾリル) ー
7-アミノー9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
75. N-フェニル-N-(3'-フルオランテニル)-2-N'-(2", 7"-ジフ
ェニルカルバゾリル) -7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
7 6. N-フェニル-N- (3'-フルオランテニル) -2-N'- (3", 6"-ジメ
チルカルバゾリル) - 7 - アミノ - 9, 9 - ジメチル - 9 H - フルオレン
7 7. N-フェニル-N-(8'-フルオランテニル)-2-N'-(3", 6"-ジフ
ェニルカルバゾリル) - 7 - アミノ - 9, 9 - ジメチル - 9 H - フルオレン
78. N-フェニル-N-(3'-フルオランテニル)-2-N'-カルバゾリル-7-
アミノー9, 9-ジフェニルー9H-フルオレン
79. N-フェニル-N-(3'-フルオランテニル)-2-N'-カルバソリル-7-
アミノー 9 、 9 ージ (4 " ーフェニルフェニル) - 9 H ーフルオレン
80. N-フェニル-N-(3'-フルオランテニル)-2-N'-カルバゾリル-7-
アミノー9, 9-ジ(4"ージメチルフェニル)-9H-フルオレン
81. N-フェニル-N-(3'-フルオランテニル)-2-N'-カルバゾリル-7-
アミノー9, 9-ジ(4"-シクロヘキシルフェニル)-9H-フルオレン
82. N- (1'-ナフチル)-N- (3"-フルオランテニル)-2-N'-カルバゾ
リルー7-アミノー9, 9-ジフェニルー9H-フルオレン
```

83. N- (2'-ナフチル)-N- (8"-フルオランテニル)-2-N'-カルバゾ

50

```
リルー7 - 7 = 1 - 9, 9 - ジフェニル - 9 H - フルオレン
```

8 4. N, N-ジ (3'-フルオランテニル) -2-N'-カルバゾリルー7-アミノー 9, 9-ジメチルー9H-フルオレン

85. N, N-ジ (3'-フルオランテニル) -2-N'-カルバゾリルー7-Tミノー 9, 9-ジシクロヘキシルー 9 H-フルオレン

86. N, N-ジ (3'-フルオランテニル) -2-N'- (2", 7"-ジメチルカルバゾリル) -9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン

87. N, N-ジ (3'-フルオランテニル) -2-N'- (2", 7"-ジフェニルカルバゾリル) -9, 9-ジメチル-9H-フルオレン

88. N, N-ジ (3'-フルオランテニル) -2-N'- (3", 6"-ジフェニルカ 10ルバゾリル) -9, 9-ジメチル-9H-フルオレン

89. N, N-ジ (3'-フルオランテニル) -2-N'-カルバゾリルー7-アミノー9, 9-ジフェニルー9H-フルオレン

90. N, $N-\tilde{y}$ (3'- $7\nu\lambda$ 7- $7\nu\lambda$ 7- $7\nu\lambda$ 7- $7\nu\lambda$ 7-9, $9-\tilde{y}$ (4"- $7\nu\lambda$ 7- $7\nu\lambda$

91. N, N, N'ートリ (3'ーフルオランテニル) -N-フェニル-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン

92. N, N, N'ートリ (3'ーフルオランテニル) -N-(1"-ナフチル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン

93. N, N, N'ートリ (3'ーフルオランテニル) -N- (2"ーナフチル) -2, 20 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9 H-フルオレン

94. N, N, N'ートリ (3'ーフルオランテニル) -N- (4"ーフェニルフェニル) -2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン

9 5 . N, N, N'ートリ (3'ーフルオランテニル) -N- (4"ーシクロヘキシルフェニル) -2, 7-ジアミノー 9, 9-ジメチルー 9 H-フルレオレン

96. N, N, N'ートリ (3'ーフルオランテニル) -N-フェニル-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン

97. N, N, N'ートリ (3'ーフルオランテニル) - N - フェニル- 2, 7 - ジアミノ- 9, 9 - ジシクロペンチル- 9 H - フルオレン

98. N, N, N' - トリ (3' - フルオランテニル) - N - (1" - ナフチル) - 2, 30 $7 - \Im F > 1 - 9$, $9 - \Im F > 1 - 9$ H - フルオレン

100. N, N, N'-トリ(3'-フルオランテニル)-N-(4"-フェニルフェニル)-2, 7-ジアミノ-3, 6-ジメチル-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン

 $1\ 0\ 1$. N , N , N ' - トリ(3' - フルオランテニル)- N - (4" - シクロヘキシルフェニル)- 2 , 7 - ジアミノ- 3 , 6 - ジメチル- 9 , 9 - ジフェニル- 9 H - フルオレン

 $1\ 0\ 2$. N, N, N' ートリ (3 ' - フルオランテニル) - N - (4 " - メチルフェニル) - 2 , 7 - ジアミノ- 3 , 6 - ジフェニル- 9 , 9 - ジシクロヘキシル- 9 H - フルオ + 40 レン

103. N, N, N', N'-テトラ (3'-フェニルー4'-フルオランテニル) - 2 , $7 - \Im r > 1 - 9$, $9 - \Im r > 1 - 9$ H - フルオレン

 $1\ 0\ 4$. N , N , N , N , N - テトラ (3 ' - メトキシー 4 ' - フルオランテニル) - 2 , 7 - ジアミノ- 9 , 9 - ジシクロヘキシル- 9 H - フルオレン

105. N, N, N', N'-テトラ (3'-フルオランテニル) -2, 7-ジアミノー9, 9-ジフェニル-9H-フルオレン

106. N, N, N', N'ーテトラ (3'ーフルオランテニル)ー2, 7-ジアミノー9, 9-ジベンジルー9H-フルオレン

107. N, N, N', N'-テトラ (3'-メチル-9'-フルオランテニル)-2,

7-ジアミノ-9, 9-ジベンジル-9H-フルオレン

108. N, N, N', N'-テトラ (3'-フェニルー9'-フルオランテニル) -2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロオクチル-9H-フルオレン

1 1 0 . N, N, N', N'-テトラ (3'-フルオランテニル) -2, 7-ジアミノー3, 6-ジメチル-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン

1 1 1 . N, N, N', N'ーテトラ (3'ーフルオランテニル)ー2, 7-ジアミノー9, 9-ジ (2", 5" -ジフェニルフェニル) - 9 H - フルオレン

[0016]

本発明の一般式(1)で表されるアミン化合物は其自体公知の方法により製造することができる。

一般式(1)で表されるアミン化合物の製造(化5)

[0017]

【化5】

[0018]

[式中、 X_1 、 X_2 、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 、 Z_6 、 R_1 および R_2 は一般式(1)と同様の意味を表し、 L_1 および L_2 は塩素、臭素、ヨウ素等のハロゲン原子またはトリフルオロメタンスルホニルオキシ基等の脱離基を表す〕

すなわち、一般式 (A) で表される化合物に、一般式 (B) および/または一般式 (B') で表される化合物を反応させることにより製造することができる。

尚、一般式(A)で表される化合物と一般式(B)および/または一般式(B)で表される化合物の反応は▲1▼塩基(例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム)および銅触媒の存在下に、所望により極性溶媒(例えば、Nージメチルピロリドン、N,Nージメチルホルムアミド、N,Nージメチルアセトアミド、N,Nージメチルイミダゾリジノン、oージクロロベンゼン)中で、一般式(A)で表される化合物を反応させるカル合物と一般式(B)および/または一般式(B)が表される化合物を反応させるカルカム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム)およびパラジウム触媒「例えば、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム、パラジウム/炭素、酢酸パラジウム/トリー tertーブチルホスフィン、酢酸パラジウム/シンクロヘキシルフェニルホスフィン、トリス(ブチルホスフィン、酢酸パラジウム/トリー tertーブチルホスフィン、酢酸パラジウム/トリー tertーブチルホスフィン、酢酸パラジウム/ドリー tertーブチルホスフィン、酢酸パラジウム/トリー tertーブチルホスフィン、酢酸パラジウム/トリー tertーブチルホスフィン、酢酸パラジウム/トリー tertーブチルホスフィン、O存在下に、一般式(A)で表される化合物と一般式(B)および/または一般式(B)で表される化合物を反応させる方法により実施することができる。

[0019]

次に本発明の有機電界発光素子ついて説明する。本発明の有機電界発光素子は、一対の電極間に、一般式(1)で表されるアミン化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなるものである。有機電界発光素子は、通常一対の電極間に少なくとも1種の発光成分を含有する発光層を少なくとも一層挟持してなるものである。発光層に使用する化合物の正孔注入および正孔輸送、電子注入および電子輸送の各機能レベルを考慮し、所望に応じて、正孔注入成分を含有する正孔注入輸送層および/または電子注入輸送成分を含有する電子注入輸送層を設けることもできる。

40

例えば、発光層に使用する化合物の正孔注入機能、正孔輸送機能および/または電子注入機能、電子輸送機能が良好な場合には、発光層が正孔注入輸送層および/または電子注入輸送層を兼ねた型の素子構成として一層型の素子構成とすることができる。また、発光層が正孔注入機能および/または正孔輸送機能に乏しい場合には発光層の陽極側に正孔注入輸送層を設けた二層型の素子構成、発光層が電子注入機能および/または電子輸送機能に乏しい場合には発光層の陰極側に電子注入輸送層を設けた二層型の素子構成とすることができる。さらには発光層を正孔注入輸送層と電子注入輸送層で挟み込んだ構成の三層型の素子構成とすることも可能である。

また、正孔注入輸送層、電子注入輸送層および発光層のそれぞれの層は、一層構造であっても多層構造であってもよく、正孔注入輸送層および電子注入輸送層は、それぞれの層において、注入機能を有する層と輸送機能を有する層を別々に設けて構成することもできる

本発明の有機電界発光素子において、一般式(1)で表されるアミン化合物で表されるア ミン化合物は、正孔注入輸送層および/または発光層の構成成分として使用することが好 ましく、正孔注入輸送層の構成成分として使用することがより好ましい。

本発明の有機電界発光素子において、一般式(1)で表されるアミン化合物で表されるア ミン化合物は、単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。

[0020]

本発明の有機電界発光素子の構成としては、特に限定されるものではないが、例えば、(EL-1)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図1)、(EL-2)陽極/正孔注入輸送層/発光層/陰極型素子(図2)、(EL-3)陽極/発光層/陰極型素子(図3)、(EL-4)陽極/発光層/陰極型素子(図3)、(EL-4)陽極/発光層/陰極型素子(図3)、(EL-4)陽極/発光層/陰極型素子(図3)、などを挙げることができる。さらには、発光層を電子注入輸送層/形成んだ形の(EL-5)陽極/正孔注入輸送層/電子注入輸送層/発光層/発光層/電子注入輸送層/医光度/医上-6)発光層として発光成分を一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子(区1-6)発光層として正孔注入輸送成分および電子注入成分を混合させた一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子(図6)、(EL-7)発光層として正孔注入輸送成分および電子注入成分を混合させた一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子(図7)、(EL-8)発光層として発光成分および電子注入成分を混合させた一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子(図8)のいずれであってもよい。

[0021]

本発明の有機電界発光素子は、これらの素子構成に限定されるものではなく、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層を複数設けることも可能である。また、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層を発光層との間に、正孔注入輸送成分と発光成分の混合層および/または発光層と電子注入輸送層との間に、発光成分と電子注入輸送成分の混合層を設けることもできる。

[0022]

好ましい有機電界発光素子の構成は、(EL-1)型素子、(EL-2)型素子、(EL-5)型素子、(EL-6)型素子または(EL-7)型素子であり、より好ましくは、(EL-1)型素子、(EL-2)型素子または(EL-7)型素子である。

[0023]

以下、本発明の有機電界発光素子の構成要素に関し、詳細に説明する。なお、例として(図1)に示す(EL-1)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子を取り上げて説明する。

[0024]

(図1) において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入輸送層、4は発光層、5は電子注入輸送層、6は陰極、7は電源を示す。

本発明の有機電界発光素子は基板1に支持されていることが好ましく、基板としては、特に限定されるものではないが、透明ないし半透明である基板が好ましく、材質としては、

10

20

30

ソーダライムガラス、ボロシリケートガラス等のガラスおよびポリエステル、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリプロピレン、ポリエチレン等の透明性高分子が挙げられる。また、半透明プラスチックシート、石英、透明セラミックスあるいはこれらを組み合わせた複合シートからなる基板を使用することもできる。さらに、基板に、例えば、カラーフィルター膜、色変換膜、誘電体反射膜を組み合わせて、発光色をコントロールすることもできる。

変換膜、誘電体及射膜を組み合わせて、発光色をコントロールすることもできる。 陽極2としては、仕事関数の比較的大きい金属、合金または導電性化合物を電極材料として使用することが好ましい。陽極に使用する電極材料としては、例えば、金、白金、銀、銅、コバルト、ニッケル、パラジウム、バナジウム、タングステン、酸化インジウム(In2O3)、酸化錫(SnO2)、酸化亜鉛、ITO(インジウム・チン・オキサイド:Indium Tin Oxide)、ポリチオフェン、ポリピロールなどを挙げることができる。これらの電極材料は単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。 陽極は、これらの電極材料を、例えば、蒸着法、スパッタリング法等の方法により、基板の上に形成することができる。

また、陽極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。陽極のシート電気抵抗は、好ましくは、数百 Ω / \square 以下、より好ましくは、 $5\sim5$ 0 Ω / \square 程度に設定する。

陽極の厚みは使用する電極材料の材質にもよるが、一般に、5~1000nm程度、より好ましくは、10~500nm程度に設定する。

正孔注入輸送層3は、陽極からの正孔(ホール)の注入を容易にする機能、および注入された正孔を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。

本発明の電界発光素子の正孔注入輸送層は、一般式 (1) で表される化合物および/または他の正孔注入輸送機能を有する化合物 (例えば、フタロシアニン誘導体、トリアリールアミン誘導体、トリアリールメタン誘導体、オキサゾール誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、ピラゾリン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリーNービニルカルバゾールなど)を少なくとも1種使用して形成することができる。

正孔注入輸送機能を有する化合物は、単独で使用してもよく、または複数併用してもよい

[0025]

本発明の有機電界発光素子は、好ましくは、正孔注入輸送層に一般式(1)で表されるア ミン化合物を含有する。本発明の有機電界発光素子において使用することができる本発明 の一般式(1)で表されるアミン化合物以外の正孔注入輸送機能を有する化合物としては 、トリアリールアミン誘導体(例えば、4,4'ービス [N-フェニルーN-(4"ーメ チルフェニル) アミノ〕ビフェニル、4, 4, 4, -ビス [N-フェニル-N-(3"-メチシフェニル) アミノ] ビフェニル、4, 4'ービス [N-フェニル-N-(1"ーナフチ 3 " - メチルフェニル) アミノ] ビフェニル、1, 1 - ビス〔4 ' - [N, N - ジ (4 " -メチルフェニル)アミノ]フェニル]シクロヘキサン、9,10-ビス[N-(4)-メチルフェニル) - N - (4" - n - ブチルフェニル) アミノ〕フェナントレン、3,8 ービス (N, N-ジフェニルアミノ) - 6 - フェニルフェナントリジン、4 - メチルー N , Nービス〔4"、4"'ービス[N' ,N'-ジ(4-メチルフェニル)アミノ]ビフ ェニルー4ーイル〕アニリン、N, N'ービス [4ー(ジフェニルアミノ)フェニル〕ー N, N'-ジフェニルー1, 3-ジアミノベンゼン、N, N'-ビス〔4-(ジフェニル アミノ) フェニル〕-N, N'-ジフェニル-1, 4-ジアミノベンゼン、5, 5"-ビ ス [4-(ビス [4-メチルフェニル] アミノ] フェニル-2, 2':5', 2"-ター チオフェン、1, 3, 5ートリス(ジフェニルアミノ)ベンゼン、4, 4', 4"ートリ ス (N-カルバゾリイル) トリフェニルアミン、4, 4', 4"-トリス [N, N-ビス

(4"'-tert-ブチルビフェニル-4""-イル)アミノ]トリフェニルアミン、

10

^^

30

1,3,5-トリス [N-(4'-ジフェニルアミノ] ベンゼンなど、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリーN-ビニルカルバゾールおよびその誘導体がより好ましい。 一般式 (1) で表されるアミン化合物と他の正孔注入機能を有する化合物を併用する場合

、正孔注入輸送層中に占める一般式(1)で表されるアミン化合物の含有量は、好ましくは、0.1重量%以上、より好ましくは、0.5~99.9重量%、さらに好ましくは3~97重量%である。

発光層4は、正孔および電子の注入機能、それらの輸送機能、正孔と電子の再結合により励起子を生成させる機能を有する化合物を含有する層である。

発光層は、一般式(1)で表されるアミン化合物および/または他の発光機能を有する化合物を少なくとも一種用いて形成することができる。

一般式(1)で表されるアミン化合物以外の発光機能を有する化合物としては、例えば、 アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体、ジケトピロロピロール誘導体、多環芳香族化合 物〔例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセン、デカ サイクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペン タジエン、9,10-ジフェニルアントラセン、9,10-ビス(フェニルエチニル)ア ントラセン、1, 4 - ビス (9' - エチニルアントセニル) ベンゼン、4, 4' - ビス (9"-エチニルアントラセニル) ビフェニル、ジベンゾ [f, f] ジインデノ [1, 2, 3-cd:1', 2', 3'-1m]ペリレン誘導体]、トリアリールアミン誘導体 (例 えば、正孔注入輸送機能を有する化合物として前述した化合物を挙げることができる)、 有機金属錯体〔例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベン ゾ [h] キノリノラート) ベリリウム、2 - (2 ' - ヒドロキシフェニル) ベンゾチアゾ ールの亜鉛塩、4-ヒドロキシアクリジンの亜鉛塩、3-ヒドロキシフラボンの亜鉛塩、 5-ヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩〕、 スチルベン誘導体〔例えば、1、1、4、4-テトラフェニル-1、3-ブタジエン、4 ,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル、4,4'-ビス[(1,1,2 ートリフェニル)エテニル]ビフェニル〕、クマリン誘導体(例えば、クマリン1、クマ リン6、クマリン7、クマリン30、クマリン106、クマリン138、クマリン151 、クマリン152、クマリン153、クマリン307、クマリン311、クマリン314 、クマリン334、クマリン338、クマリン343、クマリン500)、ピラン誘導体 (例えば、DCM1、DCM2)、オキサゾン誘導体(例えば、ナイルレッド)、ベンゾ チアゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾールタ動体、ピラジン誘 導体、ケイ皮酸エステル誘導体、ポリーN-ビニルカルバゾールおよびその誘導体、ポリ チオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよび その誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリビフェニレンビニレンおよ びその誘導体、ポリターフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリナフチレンビニレン およびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体等を挙げることができる。 一般式(1)で表されるアミン化合物以外の発光機能を有する化合物としては、アクリド ン誘導体、キナクリドン誘導体、多環芳香族化合物、トリアリールアミン誘導体、有機金 属錯体およびスチルベン誘導体が好ましく、多環芳香族化合物、有機金属錯体がより好ま しい。本発明の有機電界発光素子は、発光層に一般式(1)で表されるアミン化合物を含 有していることが好ましい。

一般式(1)で表される化合物と一般式(1)で表されるアミン化合物以外の発光機能を有する化合物を併用する場合、発光層中に占める一般式(1)で表される化合物の割合は、好ましくは、0.001~99.999重量%に調節する。また、発光層は、J.Appl.Phys.,65、3610(1989)、特開平5-214332号公報に記載のように、ホスト化合物とゲスト化合物(ドーパント)から形成することも可能である。一般式(1)で表されるアミン化合物は発光層のホスト化合物として使用することもでき、またゲスト化合物として使用することも可能である。一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト化合物として発光層を形成する場合、ゲスト化合物としては、例えば、前記のほかの発光機能を有する化合物を挙げることができ、中でも多環芳香族化合物は好まし

10

20

30

W.

一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト化合物として発光層を形成する場合、一般式(1)で表されるアミン化合物に対して、ゲスト化合物は、好ましくは、0.01 から 40 重量%、より好ましくは、0.01 ~ 30 重量%、さらに好ましくは0.1 ~ 20 重量%使用する

発光層は、一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト材料として、一般式(1)で表されるアミン化合物以外の発光機能を有する化合物を少なくとも1種ゲスト材料として使用して形成することができる。

本発明の有機電界発光素子は、好ましくは、発光層に一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト材料として含有する。

一般式(1)で表されるアミン化合物ホスト材料として、他の発光機能を有する化合物と併用する場合、発光層中に占める一般式(1)で表されるアミン化合物は、好ましくは、 $40.0\%\sim99.9\%$ であり、より好ましくは、 $60.0\sim99.9$ 重量%である。ゲスト材料の使用量は、一般式(1)で表されるアミン化合物に対して $0.001\sim40$ 重量%、好ましくは、 $0.05\sim30$ 重量%、より好ましくは、 $0.1\sim20$ 重量%である。また、ゲスト材料は、単独で使用してもよく、複数併用してもよい。

[0026]

一般式(1)で表されるアミン化合物を、ゲスト材料として用いて発光層を形成する場合、ホスト材料としては、多環芳香族化合物、トリアリールアミン誘導体、有機金属錯体およびスチルベン誘導体が好ましく、多環芳香族化合物、有機金属錯体がより好ましい。一般式(1)で表されるアミン化合物をゲスト材料として使用する場合、一般式(1)で表されるアミン化合物を、好ましくは、0.001~40重量%、より好ましくは、0.01~30重量%、さらに好ましくは、0.1~20重量%使用する。

電子注入輸送層 5 は、陰極からの電子の注入を容易にする機能および/または注入された電子を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。

電子注入輸送層に使用される電子注入機能を有する化合物としては、例えば、有機金属錯体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、ニトロ置換フルオノン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオノン誘導体、チオピランジオキサイド誘導体などを挙げることができる。また、有機金属錯体としては、例えば、トリス(8ーキノリノラート)アルミニウム等の有機アルミニウム錯体、ビス(10ーベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム等の有機ベリリウム塩体、5ーヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5ーヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5ーヒドロキシフラボンのバリリウム塩、5ーヒドロキシフラボンのバリリウム塩、6ーヒドロキシフラボンのバリリウム塩、5ーヒドロキシフラボンのがリリウム塩、5ーヒドロキシフラボンのがリリウム塩、5ーヒドロキシフラボンのがリリウム塩、6ーヒドロキシフラボンのがリリウム塩、6ーヒドロキシフラボンのがリリウム塩、5ーヒドロキシフラボンのがリリウム塩、5ーヒドロキシフラボンのがリリウム塩体であり、より好ましては、例えまたは未置換の8ーキノリラート配位子を有する有機アルミニウム錯体としては、例えば、一般式(a)~一般式(c)で表される化合物を挙げることができる。

[0027]

 $(Q)_3 - A1$ (a)

(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表す)

 $(Q)_2 - Al - O - L'$ (b)

(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表し、O-L'はフェノラート配位子を表し、L'はフェニル基を有する炭素数6~24の炭化水素基を表す)

 $(Q)_{2} - A_{1} - O - A_{1} - (Q)_{2}$ (c)

(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表す)

置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する有機アルミニウム錯体の具体例としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(3,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,6-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,6-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、

10

20

30

30

40

ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(フェノラート)アルミニウム、ビス(2-メ チルー8-キノリノラート) (2-メチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチ ルー8-キノリノラート) (3-メチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル - 8 - キノリノラート)(4 - メチルフェノラート)アルミニウム、ビス (2 - メチルー 8-キノリノラート) (2-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (3-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチルー 8-キノリノラート) (4-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチルー 8-キノリノラート)(2, 3-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチ ルー8-キノリノラート) (2,6-ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (3,4-ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (3,5-ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビ ス (2-メチル-8-キノリノラート) (3, 5-ジーtert-ブチルフェノラート) アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,6-ジフェニルフェノラ ート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,6-トリフェ ニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4, 6-トリメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート) (2, 4, 5, 6-テトラメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチルー8-キノリノラート) (1-ナフトラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノ ラート) (2-ナフトラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラ ート) (2-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノ リノラート) (3-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8 ーキノリノラート) (4-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチ $4 - \vec{y} + \vec{y} + \vec{v} - 8 - \vec{z} + \vec{y} +$ ルミニウム、

 $\begin{tabular}{l} \begin{tabular}{l} \begin{ta$

電子注入機能を有する化合物は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。
陰極 6 としては、比較的仕事関数の小さい金属、合金または導電性化合物を電極材料としては、例えば、リチウム、リチウムーインジウム合金、ナトリウム、ナトリウムーカリウム合金、カルシウム、マグネシウムー銀合金、マグネシムーインジウム合金、インジウム、ルテニウム、チタニウム、マンガン、イットリウム、アルミニウム、アルミニウムーリチウム合金、アルミニウムーカルシウム合金、アルミニウムーマグネシウム合金、グラファイト薄を挙げることができる。これらの電極材料は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。
陰極はこれらの電極材料を、例えば、蒸着法、スパッタリング法、イオン蒸着法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法により電子注入輸送層の上に形成することができる。

また、陰極は一層構造であってもよく、多層構造であってもよい。陰極のシート電気抵抗は数百Ω/□以下とするのが好ましい。陰極の厚みは、使用する電極材料にもよるが、通常5~1000nm、好ましくは、10~500nmとする。本発明の有機電界発光素子

10

20

30

. _

の発光を高率よく取り出すために、陽極または陰極の少なくとも一方の電極は、透明ない し半透明であることが好ましく、一般に、発光光の透過率が70%以上となるように陽極 または陰極の材料、厚みを設定することが好ましい。

また、本発明の有機電界発光素子は、正孔注入輸送層、発光層および電子注入輸送層の少なくとも一層中に、一重項酸素クエンチャーを含有していてもよい。一重項酸素クエンチャーとしては、特に限定されるものではないが、例えば、ルブレン、ニッケル錯体、ジフェニルイソベンゾフランが挙げられ、好ましくは、ルブレンである。

一重項酸素クエンチャーが含有されている層としては、特に限定されるものではないが、 好ましくは、発光層または正孔注入輸送層であり、より好ましくは、正孔注入輸送層であ る。尚、正孔注入輸送層に一重項酸素クエンチャーを含有させる場合、正孔注入輸送層中 に均一に含有させてもよく、正孔注入輸送層と隣接する層(例えば、発光層、発光機能を 有する電子注入輸送層)の近傍に含有させてもよい。

一重項酸素クエンチャーの含有量としては、含有される層(例えば、正孔注入輸送層)を構成する全体量の 0.01~50重量%、好ましくは、 0.05~30重量%、より好ましくは、 0.1~20重量%である。

正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の形成方法に関しては、特に限定されるものではなく、例えば、真空蒸着法、イオン化蒸着法、溶液塗布法(例えば、スピンコート法、キャスト法、デイップコート法、ロールコート法、ラングミュア・ブロジェット法、を使用することができる。真空蒸着法により正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を形成する場合、真空蒸着の条件は、特に限定定をあるものではないが、通常、10⁻⁵ Torr程度以下の真空下で、50~500℃程度のボート温度(蒸着源温度)、-50~300℃程度の基板温度で、0.005~50nm/sec程度の蒸着速度で実施することが好ましい。この場合、正孔注入輸送層、発光の電子注入輸送層等の各層は、真空下で、連続して形成することが可能となる。真空蒸着法により、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を、複数の化合物を使用して形成する場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して、共蒸着することが好ましい。

溶液塗布法により各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダ 一樹脂等とを、溶媒に溶解または分散させて塗布液とする。溶媒としては、例えば、有機 溶媒(ヘキサン、オクタン、デカン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1-メチル ナフタレン等の炭化水素系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケト ン、シクロヘキサノン等のケトン系溶媒、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロ メタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロベンゼン、ジ クロロベンゼン、クロロトルエン等のハロゲン化炭化水素系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチ ル、酢酸アミル、乳酸エチル等のエステル系溶媒、メタノール、プロパノール、ブタノー ル、ペンタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、メチルセロソルブ、エチルセロ ソルブ、エチレングリコール等のアルコール系溶媒、ジブチルエーテル、テトラヒドロフ ラン、ジオキサン、ジメトキシエタン、アニソール等のエーテル系溶媒、N,N-ジメチ ルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド、1-メチル-2-ピロリドン、1, 3 - ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルホキシド等の極性溶媒)、水を挙げる ことができる。溶媒は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。正孔注入輸送層 、 発 光 層 、 電 子 注 入 輸 送 層 の 各 層 の 成 分 を 溶 媒 に 分 散 さ せ る 場 合 に は 、 分 散 方 法 と し て 、 例えば、ボールミル、サンドミル、ペイントシェーカー、アトライター、ホモジナイザー 等 を 使 用 して 微 粒 子 状 に 分 散 す る 方 法 を 使 用 す る こ と が で き る 。

また、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層に使用しうるバインダー樹脂としては、ポリーNービニルカルバゾール、ポリアリーレート、ポリスチレン、ポリエステル、ポリシロキサン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、ポリエーテル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド、ポリエーテルスルホン、ポリアニリンおよ

10

20

30

びその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体などの高分子化合物を挙げることができる。バインダー樹脂は単独で使用してもよく、また、複数併用してもよい。塗布液の濃度は、特に限定されるものではないが、実施する塗布法により所望の厚みを作製するに適した濃度範囲に設定することができ、通常、0.1~50重量%、好ましくは、1~30重量%に設定する。バインダー樹脂を使用する場合、その使用量は特に限定されるものではないが、通常、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を形成する成分とバインダー樹脂の総量に対してバインダー樹脂の含有率が(一層型の素子を形成する場合には各成分の総量に対して)、5~99.9重量%、好ましくは、10~99重量%となるように使用する。

正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層の膜厚は、特に限定されるものではないが、通常、5nm~5μmとする。

また、上記の条件で作製した本発明の有機電界発光素子は、酸素や水分等との接触を防止する目的で、保護層(封止層)を設けたり、また、素子を不活性物質中(例えば、パラフィン、流動パラフィン、シリコンオイル、フルオロカーボン油、ゼオライト含有フルオロカーボン油)に封入して保護することができる。保護層に使用する材料としては、例えば、有機高分子材料(例えば、フッ素樹脂、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、エポキシシリコーン樹脂、ポリスチレン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド)、無機材料(例えば、ダイアモンド薄膜、アモルファスシリカ、電気絶縁性ガラス、金属酸化物、金属窒化物、金属炭化物、金属硫化物)、さらには、光硬化性樹脂を挙げることができる。保護層に使用する材料は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。保護層は一層構造であってもよく、また多層構造であってもよい。

また、本発明の有機電界発光素子は、電極に保護膜として金属酸化物膜(例えば、酸化アルミニウム膜)、金属フッ化膜を設けることもできる。

本発明の有機電界発光素子は、陽極の表面に界面層(中間層)を設けることもできる。界面層の材質としては、有機リン化合物、ポリシラン、芳香族アミン誘導体、フタロシアニン誘導体等を挙げることができる。

さらに、電極、例えば、陽極はその表面を、酸、アンモニア/過酸化水素、あるいはプラ ズマで処理して使用することもできる。

[0028]

本発明の有機電界発光素子は、通常、直流駆動型の素子として使用することができるが、交流駆動型の素子としても使用することができる。また、本発明の有機電界発光素子は、セグメント型、単純マトリック駆動型等のパッシブ駆動型であってもよく、TFT(薄膜トランジスタ)型、MIM(メタルーインスレーターーメタル)型等のアクティブ駆動型であってもよい。駆動電圧は通常、2~30Vである。本発明の有機電界発光素子は、パネル型光源(例えば、時計、液晶パネル等のバックライト)、各種の発光素子(例えば、LED等の発光素子の代替)、各種の表示素子〔例えば、情報表示素子(パソコンモニター、携帯電話・携帯端末用表示素子)〕、各種の標識、各種のセンサーなどに使用することができる。

[0029]

【実施例】

以下、実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は、以下の実施例に限定されるものではない。

[0030]

実施例1:例示化合物2の製造

▲1▼N-(3-フルオランテニル)アニリンの製造

アニリン 3 7. 2 g (0.4 mol) 、3 - $\overline{}$ - $\overline{}$ $\overline{}$ $\overline{}$ $\overline{}$ $\overline{}$ 1 1 2 . 4 g (0.4 mol) 、 t e r t - $\overline{}$ $\overline{}$

10

20

30

タン錯体 0.3 8 g、1,1'ービス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン 0.8 4 g およびテトラヒドロフラン 1 2 0 g よりなる混合物を、窒素雰囲気下、6 0 ℃に加熱し、同温度で 8 時間加熱攪拌した。その後、反応混合物を室温に冷却し、テトラヒドロフラン 3 0 0 g を添加し、その後、セライトろ過し、ろ液からテトラヒドロフランを減圧下に留去した。残渣をトルエンから 2 回再結晶し、目的とする N ー(3 ーフルオランテニル)アニリン 7 5.0 g を得た。

▲ 2 ▼ N, N-ジフェニル-2-アミノ-7-クロロ-9, 9-ジメチル-9 H-フルオレンの製造

2-クロロー7-ョードー9, 9-ジメチルー9 H-フルオレン5 4 6. 7 g (1.54mol), 炭酸カリウム2 7 3. 7 g (1.98mol)、N, N-ジフェニルアミン2 48.4g (1.47mol)、塩化銅4. 37g、18-8-0ラウンエーテル8. 75g、0-ジクロロベンゼン1640g およびトルエン183g よりなる混合物を1650~1700に加熱し、同温度で10時間加熱攪拌した。その後反応混合物を室温に冷却し、無機物をろ別し、さらにトルエン130g で洗浄した。ろ液から減圧下にトルエンおよび0-ジクロロベンゼンを留去した。残渣に活性炭100 101 101 101 101 101 101 101 101 102 102 103 104 105 106 107 107 107 107 107 107 107 107 107 107 107 107 107 107 107 108 109 109 109 101 109 101 101 101 101 101 101 102 101 102 102 103 104 109 109 109 101 101 101 101 102 101 101 102 101 102 102 103 104 109 101 102 101 102 101 102 103 104 109 101 101 102 101 102 103 104 105 106 107 107 107 107 107 107 107 107 107 107 109 109 109 101 101 101 101 101 102 101 101 102 101 102 102 103 103 103 103 103 104 105 105 105 105 105 107 107 108 101 101 101 101 101 102 102 103 103 105 105 105 105 107 107 107 107 107 107 109

▲ 3 ▼例示化合物 2 の製造

N, Nージフェニルー2ーアミノー7ークロロー9, 9ージメチルー9Hーフルオレン3.95g(0.01mol)、Nー(3ーフルオランテニル)アニリン4.10g(0.014mol)、tertーブトキシナトリウム1.34g(0.014mol)およびトルエン30gよりなる混合物に、窒素気流下、酢酸パラジウム31mgおよびトリーtertーブチルホスフィン0.08mlを添加し、110℃で6時間加熱攪拌した。その後、反応混合物を室温に冷却し、トルエン相を水洗した。トルエン相から減圧下にトルエンを留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、その後、トルエン/nーへキサン=3/2(vol/vol)で2回再結晶し、目的とする例示化合物2の化合物を淡黄色結晶として3.54g得た。

[0031]

実施例2:例示化合物21の製造

[0032]

実施例3:例示化合物22の製造

実施例 2 において、 2 、 7 - ジョード - 9 、 9 - ジメチル - 9 H - フルオレン 4 . 4 6 g (0 . 0 1 m o 1) を使用する代わりに、 2 、 7 - ジブロモ - 9 , 9 - ジシクロヘキシル - 9 H - フルオレン 4 . 8 8 g (0 . 0 1 m o 1) を使用した以外は、実施例 2 に記載の操作に従い、例示化合物 2 2 を淡黄色結晶として 3 . 1 8 g 得た。

[0033]

実施例4:例示化合物24の製造

▲1▼N-(3'-フルオランテニル)-1-ナフチルアミンの製造

実施例1の▲1▼において、アニリン37.2g(0.4mol)を使用する代わりに、 1-ナフチルアミン57.2g(0.4mol)を使用した以外は、実施例1の▲1▼に

20

10

30

40

10

20

40

50

記載の操作に従い、N-(3'-フルオランテニル)-1-ナフチルアミン104.3gを得た。

▲ 4 ▼ 例示化合物 2 4 の製造

実施例 2 において、N-(3-7)ルオランテニル)アニリン 7.03g (0.024 mol)を使用する代わりに、N-(3'-7)ルオランテニル)-1-7 ナフチルアミン 8.2 3g (0.024 mol)を使用した以外は、実施例 2 に記載の操作に従い、例示化合物 24 を淡黄色結晶として 4.28g 得た。

[0034]

実施例5:例示化合物34の製造

▲ 1 ▼ N - (3'-フルオランテニル)-4-フェニルアニリンの製造

▲ 2 ▼例示化合物 3 4 の製造

実施例 2 において、N-(3-7)ルオランテニル)アニリン 7.03 g (0.024 m o 1)を使用する代わりに、N-(3'-7)ルオランテニル)-4-7 ェニルアニリン 8.86 g (0.024 m o 1)を使用した以外は、実施例 2 に記載の操作に従い、例示化合物 34 を淡黄色結晶として 4.11 g 得た。

[0035]

実施例6:例示化合物36の製造

実施例 2 において、 2 、 7 ージョードー 9 、 9 ージメチルー 9 Hーフルオレン 4 . 4 6 g (0 . 0 1 m o 1) および N ー (3 ーフルオランテニル) アニリン 7 . 0 3 g (0 . 0 2 4 m o 1) を使用する代わりに、 2 、 7 ージブロモー 9 、 9 ージシクロヘキシルー 9 Hーフルオレン 4 . 8 8 g (0 . 0 1 m o 1) および N ー (3 ' ーフルオランテニル) ー 4 ーフェニルアニリン 8 . 8 6 g (0 . 0 2 4 m o 1) を使用した以外は、実施例 2 に記載の操作に従い、例示化合物 3 6 を淡黄色結晶として 3 . 9 6 g 得た。

[0036]

実施例7:例示化合物37の製造

[0037]

実施例8:例示化合物56の製造

▲ 1 ▼ 2 ークロロー 7 ー N ーカルバゾリルー 9 , 9 ージメチルー 9 H ーフルオレンの製造 2 ークロロー 7 ー ヨードー 9 , 9 ージメチルー 9 H ーフルオレン 5 4 6 . 7 g(1 . 5 4 m o 1)、炭酸カリウム 2 7 3 . 7 g(1 . 9 8 m o 1)、カルバゾール 2 4 5 . 8 g(1 . 4 7 m o 1)、塩化銅 4 . 3 7 g、 1 8 ー 8 ー クラウンエーテル 8 . 7 5 g、 o ージクロロベンゼン 1 6 4 0 g およびトルエン 1 8 3 g よりなる混合物を 1 6 5 ~ 1 7 0 ℃に加熱し、同温度で 1 0 時間加熱攪拌した。その後反応混合物を室温に冷却し、無機物をろ別し、さらにトルエン 7 3 0 g で洗浄した。ろ液から減圧下にトルエンおよび o ージクロロベンゼンを留去した。残渣に活性炭 8 . 2 g およびトルエン 1 3 0 0 g を添加し、6 0 ℃で3 0 分間攪拌した後、活性炭を 6 0 ℃でろ別した。ろ液から 1 1 0 ℃でトルエンを留去し、結晶の析出が確認された時点で濃縮を終了し、室温まで冷却して晶析を行い、2 ークロロー 7 ー N ーカルバゾリルー 9 , 9 ージメチルー 9 H ーフルオレン 4 2 5 g を得た。

▲ 1 ▼例示化合物 5 6 の製造

実施例1の▲3▼において、N, N-ジフェニル-2-アミノ-7-クロロ-9, 9-ジ

[0038]

実施例9:例示化合物57の製造

[0039]

実施例10:例示化合物59の製造

実施例 $1 \, o \, \triangle \, 3$ ▼において、N, N-ジフェニル-2-アミノ-7-クロロー9, 9-ジメチル-9H-フルオレン3.95g(0.01mol)および<math>N-(3-フルオランテニル)アニリン4.10g(0.014mol)を使用する代わりに、<math>2-クロロ-7-N-Dルバゾリルー9, $9-ジメチル-9H-フルオレン3.94g(0.01mol)および<math>N-(3'-フルオランテニル)-4-フェニルフアニリン5.17g(0.014mol)を使用した以外は、実施例 <math>1 \, o \, \Delta \, 3$ ▼に記載の操作に従い、例示化合物 $5 \, 9 \, \epsilon$ 淡黄色結晶として 4.10g 得た。

[0040]

実施例11:有機電界発光素子の作製

厚さ200mmのIT〇透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリーン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を3×10⁻⁶ Torrに減圧した。先ず、ITO透明電極上に、例示化合物2の化合物を蒸着速度0.2mm/secで75mmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層を形成した。次に、正孔注入輸送層の上にトリス(8−キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度0.2mm/secで50mmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度0.2mm/secで200mmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、50℃、乾燥雰囲気下、10mA/cm²の定電流密度で連続駆動させた。初期には、5.9V、輝度510cd/m²の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は910時間であった。

さらに、該素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した

[0041]

実施例12~19:有機電界発光素子の作製

実施例11において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物2の化合物を使用する代わりに、例示化合物21の化合物(実施例12)、例示化合物22の化合物(実施例13)、例示化合物24の化合物(実施例14)、例示化合物34の化合物(実施例15)、例示化合物36の化合物(実施例16)、例示化合物37の化合物(実施例17)、例示化合物56の化合物(実施例18)、例示化合物57の化合物(実施例19)を使用した以外は、実施例11に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。各素子からは緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、各素子は100℃で1時間放置した後でも発光特性には大きな変化は確認されなかった

20

10

30

[0042]

比較例1:

実施例11において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物2の化合物を使用する代わりに、N, N, N - ジフェニル-N, N, N - ジフェニル-N, N, N - N + N

[0043]

比較例2:

[0044]

比較例3:

実施例11において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物2の化合物を使用する代わりに、式(a)(化6)で表されるN,Nージフェニルー2ーアミノー7ーNーカルバゾリルー9,9ージメチルー9Hーフルオレンを使用した以外は、実施例13に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。各素子からは緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、該素子を100℃で1時間放置したところ、素子からの発光が減衰していることが確認された。

[0045]

【化6】

(a)

[0046]

【表 1】

10

20

第1表

有機電界発光 素子	初期特性	半減期(50℃)	
	輝度 (cd/cm2)	電圧 (V)	(hr)
実施例12	490	5.9	960
実施例13	570	6.2	910
実施例14	520	5.8	870
実施例15	500	5.7	930
実施例16	560	6.3	920
実施例17	480	5.7	820
実施例18	670	6.4	980
実施例19	650	6.3	1020
比較例1	300	6.6	5
比較例2	450	6.5	100
比較例3	450	6.5	550

20

10

[0047]

実施例20:有機電界発光素子の作製

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリーン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を3×10⁻⁶ Torrに減圧した。

先ず、ITO透明電極上に、ポリ(チオフェンー2,5ージイル)を蒸着速度 0.1 n m / s e c で、20 n m の厚さに蒸着し、第1正孔注入輸送層を形成した。次いで、例示化合物 2 4 の化合物を蒸着速度 0.2 n m / s e c で 5 5 n m の厚さに蒸着し、第2正孔注入輸送層を形成した。次に、正孔注入輸送層の上にトリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度 0.2 n m / s e c で 5 0 n m の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度 0.2 n m / s e c で 2 0 0 n m の厚さに共蒸着(重量比 1 0 : 1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10 m A / c m²の定電流密度で連続駆動させた。初期には、5.9 V、輝度 5 1 0 c d / m²の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は 1 5 0 0 時間であった。

さらに、該素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した

[0048]

40

30

実施例21:有機電界発光素子の作製

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリーン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を3×10⁻⁶ Torrに減圧した。先ず、ITO透明電極上に、4,4',4"ートリス [Nー(3"ーメチルフェニル)ーNーフェニルアミノ〕トリフェニルアミンを蒸着速度0.1 nm/secで、50nmの厚さに蒸着し、第1正孔注入輸送層を形成した。次いで、例示化合物59の化合物とルブレンを、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2 nm/secで20nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)し、第2正孔注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。次いで、その上にトリス(8ーキノリノラート

10

20

50

)アルミニウムを蒸着速度 0.2 n m/s e c で 5 0 n m の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度 0.2 n m/s e c で 2 0 0 n m の厚さに共蒸着(重量比 1 0 : 1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10 m A/c m²の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.1 V、輝度 6 1 0 c d/m²の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は 1 5 0 0 時間であった。さらに、該素子を 1 0 0 ℃で 1 時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

[0049]

実施例22:有機電界発光素子の作製

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリ ーン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この 基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダ ーに固定し、蒸着槽を3×10⁶Torrに減圧した。先ず、ITO透明電極上に、ポ リ (チオフェン-2, 5-ジイル) を蒸着速度 0.1 n m/s e c で、20 n m の厚さに 蒸着し、第1正孔注入輸送層を形成した。蒸着槽を大気圧下に戻した後、再び蒸着槽を3 ×10⁻⁶ Torrに減圧した。次いで、例示化合物57の化合物とルブレンを、異なる 蒸着源から、蒸着速度 0.2 n m / s e c で 5 5 n m の厚さに共蒸着(重量比 1 0:1) し、第2正孔注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。減圧状態を保ったまま、次に、 その上にトリス (8-キノリノラート) アルミニウムを蒸着速度 0. 2 n m / s e c で 5 Onmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を形成した。減圧状態を保ったまま、さらに、そ の上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度 0.2 n m/secで200 n m の厚さ に共蒸着 (重量比10:1) して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機 電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10mA/cm²の定電流密度で連続 駆動させた。初期には、6.2 V、輝度590 c d / m²の黄色の発光が確認された。輝 度の半減期は1400時間であった。さらに、該素子を100℃で1時間放置し、発光特 性に大きな変化が無いことを確認した。

[0050]

実施例23:有機電界発光素子の作製

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリ ーン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この 基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダ ーに固定し、蒸着槽を3×10⁶Torrに減圧した。先ず、ITO透明電極上に、例 示化合物36を蒸着速度0.1nm/secで、20nmの厚さに蒸着し、第1正孔注入 輸送層を形成した。蒸着槽を大気圧下に戻した後、再び蒸着槽を3×10⁻⁶ Torrに 減圧した。次いで、例示化合物56の化合物とルブレンを、異なる蒸着源から、蒸着速度 0.2 n m / s e c で 5 5 n m の 厚 さに 共蒸着 (重量 比 1 0 : 1) し、第 2 正 孔 注 入 輸 送 層を兼ね備えた発光層を形成した。次に、その上にトリス(8-キノリノラート)アルミ ニウムを蒸着速度 0.2 n m/s e c で 5 0 n m の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を形成 した。さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで 200 n m の厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製し た。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に 直流電圧印加し、乾燥雰囲気下、10mA/cm²の定電流密度で連続駆動させた。初期 には、5.9V、輝度590cd/m²の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は16 00時間であった。さらに、該素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が 無いことを確認した。

[0051]

実施例24:有機電界発光素子の作製

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリーン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上

に、ポリカーボネート(重量平均分子量39000)と例示化合物22の化合物を重量比100:50の割合で含有する3重量%ジクロロエタン溶液を用いてスピンコート法により、40nmの正孔注入輸送層を形成した。次にこの正孔注入輸送層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着層を3×10⁶Torrに減圧した。次に、その上にトリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に乾燥雰囲気下、10Vの直流電圧を印加したところ、87mA/cm²の電流が流れた。輝度900cd/m²の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は420時間であった。

10

20

30

[0052]

実施例25:有機電界発光素子の作製

厚さ200mmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリーン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリメチルメタクリレート(重量平均分子量25000)、例示化合物24の化合物、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムをそれぞれ重量比100:50:0.5の割合で含有する3重量%ジクロロエタン溶液を用いてスピンコート法により、100mmの発光層を形成した。次にこの発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着層を3×10⁻⁶ Torrに減圧した。発光層の上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度0.2mm/secで200mmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に乾燥雰囲気下、15Vの直流電圧を印加したところ、88mA/cm²の電流が流れた。輝度540cd/m²の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は510時間であった。

[0053]

【発明の効果】

本発明により、新規なアミン化合物、および発光寿命が長く、耐久性に優れ、かつ耐熱性の高い有機電界発光素子を提供することが可能になった。

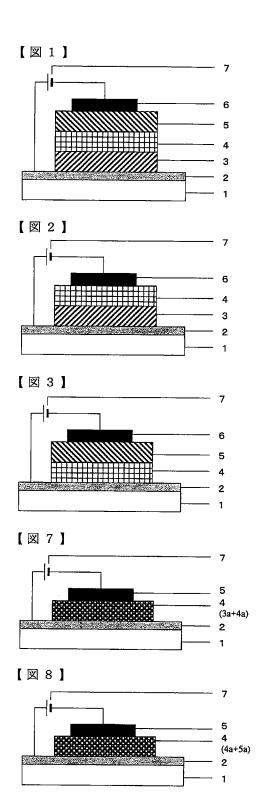
【図面の簡単な説明】

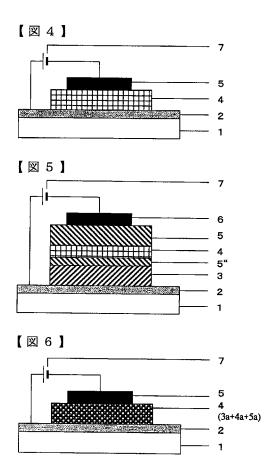
- 【図1】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図2】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図3】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図4】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図5】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図6】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図7】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図8】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【符号の説明】

1:基板

- 2: 陽極
- 3:正孔注入輸送層
- 3 a:正孔注入輸送成分
- 4: 発光層
- 4 a : 発光成分
- 5:電子注入輸送層
- 5":電子注入輸送層
- 5 a:電子注入輸送成分
- 6 : 陰極
- 7:電源





フロントページの続き

(51) Int. Cl. ⁷

FΙ

テーマコード (参考)

H 0 5 B 33/14 H 0 5 B 33/22 B D

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB06 AB12 AB14 DB03

4C204 BB05 CB25 DB01 EB01 FB09 GB01

4H006 AA01 AB92

【要約の続き】

【効果】新規なアミン化合物、耐熱性に優れ、発光寿命が長く、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供することができる。

【選択図】 なし